

**PAT-NO:** JP02003223920A  
**DOCUMENT-IDENTIFIER:** JP 2003223920 A  
**TITLE:** LIQUID-FUEL DIRECT SUPPLY FUEL CELL SYSTEM

**PUBN-DATE:** August 8, 2003

**INVENTOR-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
OKUYAMA, RYOICHI	N/A
NOMURA, EIICHI	N/A

**ASSIGNEE-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
YUASA CORP	N/A

**APPL-NO:** JP2002020409  
**APPL-DATE:** January 29, 2002

**INT-CL (IPC):** H01M008/06 , B01D053/72 , B01D053/86 , H01M008/10

**ABSTRACT:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a liquid-fuel direct supply fuel cell system from which a by-product generated by electrochemical reaction of a positive electrode and a negative electrode can certainly be removed.

**SOLUTION:** A vapor-liquid separation bath 3, which separates vapor and liquid from a reaction product generated by electrochemical reaction of the

negative electrode 12 and that generated by electrochemical reaction of the positive electrode 13, is provided, and a filter, which absorbs or decomposes the by-product, is provided in a vapor component recovery means 5, which recovers separated vapor components and discharges them to the open air.

COPYRIGHT: (C)2003,JPO

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト*(参考)
H 0 1 M 8/06		H 0 1 M 8/06	S 4 D 0 0 2
B 0 1 D 53/72		8/10	4 D 0 4 8
53/86		B 0 1 D 53/34	1 2 0 D 5 H 0 2 6
H 0 1 M 8/10		53/36	G 5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 5 頁)

(21)出願番号	特願2002-20409(P2002-20409)	(71)出願人	000006688 株式会社ユアサコーポレーション 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号
(22)出願日	平成14年1月29日(2002.1.29)	(72)発明者	奥山 良一 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株 式会社ユアサコーポレーション内
		(72)発明者	野村 栄一 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株 式会社ユアサコーポレーション内

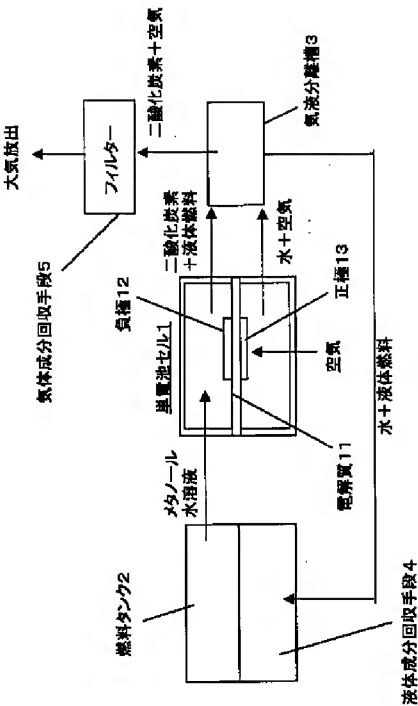
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 液体燃料直接供給形燃料電池システム

(57)【要約】

【課題】 正極、負極の電気化学反応で生成した副生成物を確実に除去することができる液体燃料直接供給形燃料電池システムを得る。

【解決手段】 負極12の電気化学反応によって生成した反応生成物と正極13の電気化学反応によって生成した反応生成物とから気体と液体を分離する気液分離槽3を設け、分離された気体成分を回収して大気に排出する気体成分回収手段5に副生成物を吸収または分解するフィルターを備える。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質を介して負極と正極とを対設した単電池セルの、負極に液体燃料を供給し、正極に酸化剤ガスを供給する構成が設けられ、かつ前記単電池セルまたはこの単電池セルが複数個積層されたセルスタックからなる発電ユニットを備えた液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、前記正、負極の電気化学反応によって生成した反応生成物から気体と液体を分離する構成を設けるとともに、前記反応生成物から分離された気体成分を回収して大気に排出する気体成分回収手段を設け、かつ前記気体成分回収手段は気体成分中の副生成物を吸収または分解するフィルターを備えたことを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

【請求項2】 請求項1記載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが活性炭またはゼオライトなどの吸着材を含有していることを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

【請求項3】 請求項1記載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが貴金属系触媒、銀系触媒を含有していることを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

【請求項4】 請求項1記載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが光化学触媒を含有していることを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は液体燃料直接供給形燃料電池システムに関するもので、さらに詳しく言えば、液体燃料と酸化剤ガスを直接供給して発電を行うことができる液体燃料直接供給形燃料電池を、分散形電源、移動体用電源、小型携帯用電源に適用するに際しての、その最適な構造に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】近年、環境問題や資源問題への対策がクローズアップされ、その一環として燃料電池の開発が活発に行われている。

【0003】燃料電池は、電解質の両側に負極と正極とを設け、負極に水素などの還元剤を供給し、正極に空気中の酸素などの酸化剤を供給し、電解質を介した電気化学反応によって発電を行うものであり、その発電効率、エネルギー密度が高いことから、ニッケル-水素電池やリチウムイオン電池などの二次電池に代わる電源として注目されている。特に、還元剤として、メタノールなどの液体燃料を用いる、直接メタノール形燃料電池に代表される液体燃料直接供給形燃料電池は、燃料を改質、ガス化せずに直接発電に利用することができることから、構造がシンプルにでき、容易に小型化、軽量化できるので、種々の移動体用電源、分散形電源、可搬用電源、コ

ンピューター用等のコンシューマ電源として検討されている。

【0004】このような直接メタノール形燃料電池では、負極に濃度が3%程度のメタノール水溶液を供給し、正極に空気を供給すると、負極の電気化学反応によって二酸化炭素が生成し、正極の電気化学反応によって水が生成し、負極側では前記二酸化炭素と反応後のメタノール水溶液が、正極側では前記水と反応後の空気が外部に排出される。

【0005】また、上記した直接メタノール形燃料電池には、正極に空気を供給するのに、ポンプ等の外部動力を用いるタイプと、正極に空気を大気中から取り入れるための溝と貫通孔を正極側セパレータに設け、この溝と貫通孔を通じて大気中の酸素を自然拡散、自然対流によって供給するタイプとが検討されており、後者のものは、前者のものと比較して、出力を得にくいといった短所はあるものの、ポンプを駆動するための電力が不要であることから、発電効率を高くでき、システムをシンプルでコンパクトにできる、ポンプの駆動音のない静かな発電機にできる、といった長所がある。このようなことから、直接メタノール形燃料電池は、コンピューター用等の小型のコンシューマ電源として最適なものとなる可能性がある。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記のように、直接メタノール形燃料電池は、負極側から二酸化炭素と反応後のメタノール水溶液が、正極側から水と反応後の空気が外部に排出されるが、その排出物中に副生成物として生成した微量のホルムアルデヒド、蟻酸、またはこれらの反応によって生じた蟻酸メチルが混入することが知られており、これらをどのように処理するかが直接メタノール形燃料電池の実用化の上で重要であった。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は上記課題を解決するためになされたもので、前述した副生成物が外部に排出されないようにすることを目的とし、その請求項1記載の発明は、プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質を介して負極と正極とを対設した単電池セルの、負極に液体燃料を供給し、正極に酸化剤ガスを供給する構成が設けられ、かつ前記単電池セルまたはこの単電池セルが複数個積層されたセルスタックからなる発電ユニットを備えた液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、前記正、負極の電気化学反応によって生成した反応生成物から気体と液体を分離する構成を設けるとともに、前記反応生成物から分離された気体成分を回収して大気に排出する気体成分回収手段を設け、かつ前記気体成分回収手段は気体成分中の副生成物を吸収または分解するフィルターを備えたことを特徴とするものである。

【0008】また、請求項2記載の発明は、請求項1記

載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが活性炭またはゼオライトなどの吸着材を含有していることを特徴とするものである。

【0009】また、請求項3記載の発明は、請求項1記載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが貴金属系触媒、銀系触媒を含有していることを特徴とするものである。

【0010】また、請求項4記載の発明は、請求項1記載の液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、フィルターが光化学触媒を含有していることを特徴とするものである。

【0011】すなわち、請求項1～4記載の発明によれば、前述した副生成物を、活性炭またはゼオライトなどの吸着材を含有しているか、貴金属系触媒、銀系触媒を含有しているか、光化学触媒を含有しているかのフィルターを透過させた後に、外部に排出されないようにしているから、直接メタノール形燃料電池における電気化学反応で生成した蟻酸、ホルムアルデヒド、メタノールなどが蒸気の状態では外部に排出されることはない。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明を、その実施の形態に基づいて説明する。

【0013】図1は、本発明の第1の実施の形態に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの例として示した直接メタノール形燃料電池システムの構成図であり、その特徴は、プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質11を介して負極12と正極13とを対設して単電池セル1を発電ユニットとし、前記負極12に、液体燃料としてのメタノール水溶液を、その電気化学反応に適した濃度にして貯蔵する燃料タンク2から供給し、正極13に、酸化剤ガスとしての空気を、図示していないポンプによって供給するようにし、前記単電池セル1の電気化学反応によって生成した反応生成物を、気液分離槽3で気体と液体に分離し、液体成分としての水と負極の電気化学反応に寄与したメタノール水溶液とは液体成分回収手段4としての回収タンクに回収し、気体成分としての空気と二酸化炭素とはフィルターを備えた気体成分回収手段5に回収し、前記フィルターによって気体成分中の副生成物が吸収または分解されるようにしたことである。

【0014】また、図2は、本発明の第2の実施の形態に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの例として示した直接メタノール形燃料電池システムの構成図であり、図1のシステムとの相違点は、正極13に酸化剤ガスとしての空気が、ファンによって自然拡散または自然対流で供給されるようにし、正極13の電気化学反応によって生成した水と反応に寄与した空気を、フィルターを備えた気体成分回収手段51で回収し、負極12の電気化学反応によって生成した二酸化炭素と反応後のメタノール水溶液を、気液分離槽3で気体と液体に分離し、気体成分としての二酸化炭素はフィルターを備えた気体

成分回収手段52で回収し、前記フィルターによって気体成分中の副生成物を吸収または分解するようにしたことである。なお、この第2の実施の形態のシステムでは、単電池セル1の正極側が大気中に開放されているため、単電池セル1全体をケースに入れている。

【0015】前記フィルターを、活性炭またはゼオライトなどの吸着材を含有しているものにすると、メタノール、ホルムアルデヒド、蟻酸、蟻酸メチルのような副生成物を吸着することができ、貴金属系触媒、銀系触媒を含有しているものや光化学触媒を含有しているものになると、前記副生成物を水と二酸化炭素に分解することができるので、このような副生成物が大気中に放出されるのを防止することができる。

【0016】上記したフィルターを備えた気体成分回収手段5、51、52としては、図3に、吸着材や貴金属系触媒、銀系触媒を含有しているものの例を示しているが、これらを図示したハニカム層に担持させておくのがよく、また、図4に光化学触媒を含有しているものの例を示しているが、この場合は、同様にハニカム層に担持させておくとともに、これに太陽光が照射されるようにしたり、ケミカルランプの光が照射されるようにして、これを活性化させるようにする。

【0017】また、上記した吸着材や種々の触媒は単独で用いてもよいが、それぞれを適宜組み合わせてもよい。この場合は、それらの相乗効果を期待することができる。

【0018】また、上記した実施の形態は、液体燃料にメタノール水溶液を用いる直接メタノール形燃料電池システムで説明したが、メタノール水溶液以外の液体燃料、たとえばエチルアルコール、ブタノール、ジメチルエーテル等を用いた液体燃料直接供給形燃料電池にも適用することができる。

【0019】また、上記した実施の形態は、発電ユニットが単電池セル1からなるものについて説明したが、この単電池セル1が複数個積層されたセルスタックからなるもので発電ユニットを構成しても同様に適用することができる。

【0020】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、メタノール水溶液を改質、ガス化することなく発電を行うことができるといった直接メタノール形燃料電池を、携帯用電源、コンピューター用電源といった小型コンシューマー用途に適用するに際し、その副生成物を確実に除去することができ、上記した用途に適した直接メタノール形燃料電池システムの構成に寄与することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施の形態に係る直接メタノール形燃料電池システムの構成図である。

【図2】本発明の第2の実施の形態に係る直接メタノール形燃料電池システムの構成図である。

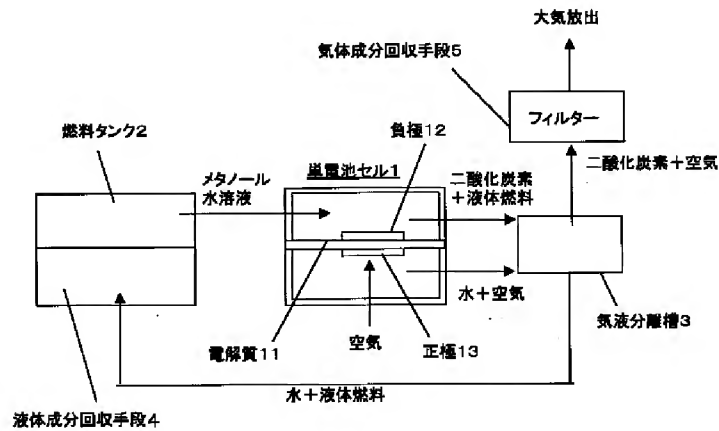
【図3】フィルターを備えた気体成分回収手段の一例である。

【図4】フィルターを備えた気体成分回収手段の他の例である。

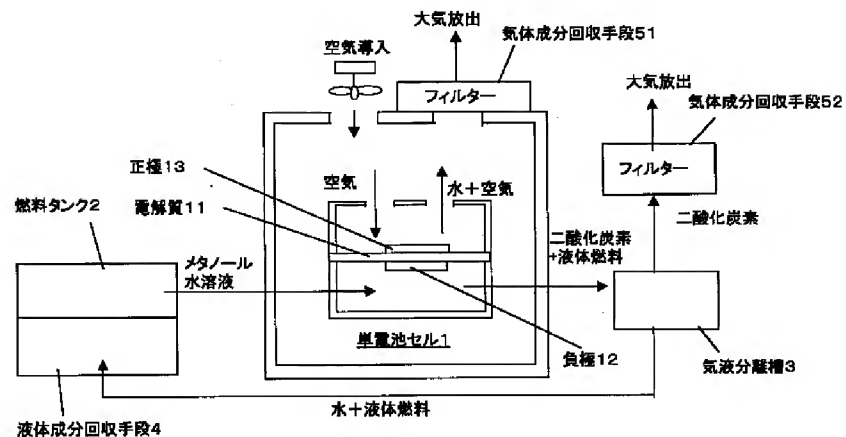
【符号の説明】

- 1 単電池セル
- 2 燃料タンク
- 3 気液分離槽
- 4 回収タンク
- 5、51、52 気体成分回収手段

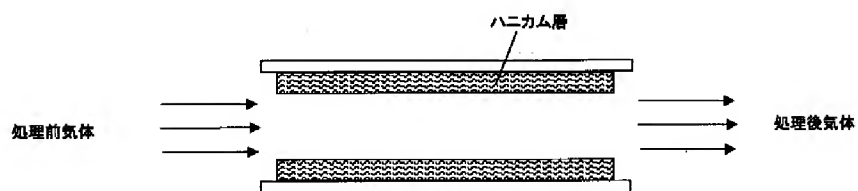
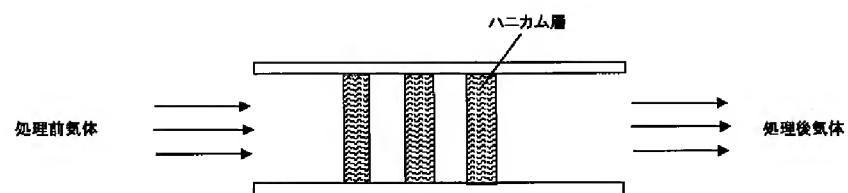
【図1】



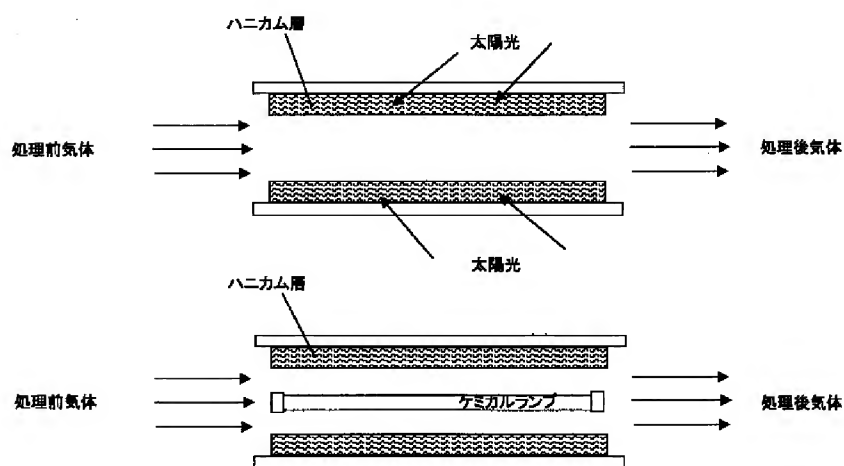
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4D002 AA32 AA40 AB03 AC10 BA03  
 CA07 DA41 DA45 FA01  
 4D048 AA17 AA19 AB01 BA30Y  
 BA31Y BA32Y BA33Y BA34Y  
 BB02 EA01  
 5H026 AA08 EE02 EE05 EE11  
 5H027 AA08 BA16

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]If this invention relates to a liquid fuel direct supply type fuel cell system and it says in more detail, It is related with the optimal structure for [ the liquid fuel direct supply type fuel cell which can generate electricity by carrying out direct supply of liquid fuel and the oxidant gas ] applying to a distributed power supply, the power supply for mobiles, and a small portable power supply.

[0002]

[Description of the Prior Art]In recent years, a close-up of the measure against an environmental problem or a resources problem is taken, and development of a fuel cell is actively performed as part of that.

[0003]A fuel cell provides a negative electrode and an anode in electrolytic both sides, supplies reducing agents, such as hydrogen, to a negative electrode, supplies oxidizers, such as oxygen in the air, to an anode, and generates electricity according to the electrochemical reaction through an electrolyte.

Since the generation efficiency and the energy density are high, it is observed as a power supply replaced with rechargeable batteries, such as a nickel hydoride battery and a lithium ion battery.

Especially the liquid fuel direct supply type fuel cell represented by the direct methanol type fuel cell using liquid fuel, such as methanol, as a reducing agent, Since fuel can be used for direct electricity generation, without [ refining and ] gasifying, structure is made simply and the weight saving of it can be miniaturized and carried out easily, it inquires as consumer power supplies various power supplies for mobiles, a distributed power supply, the power supply for portability, for computers, etc.

[0004]If the methanol aqueous solution whose concentration is about 3% is supplied to a



negative electrode in such a direct methanol type fuel cell and air is supplied to an anode, Carbon dioxide generates according to the electrochemical reaction of a negative electrode, water generates and the air after said water and a reaction is discharged outside for said carbon dioxide and the methanol aqueous solution after a reaction by the electrochemical reaction of an anode in the negative-electrode side at the anode side.

[0005]To the above-mentioned direct methanol type fuel cell. The type which uses external power, such as a pump, although air is supplied to an anode, and the type which provide the slot and breakthrough for taking in air out of the atmosphere to an anode in the anode side separator, diffuses [ natural ] oxygen in the atmosphere and supplies it by a free convection through this slot and breakthrough are considered.

Although there is demerit of a stake for obtaining an output as compared with the former thing, since the electric power for driving a pump is unnecessary, the latter thing has the strong point in which it is made to the quiet dynamo without the driving sound of a pump which generation efficiency can be made high, and is simple and can make a system compact.

Since it is such, a direct methanol type fuel cell may become the optimal as small consumer power supplies for computers etc.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]However, as mentioned above, from the negative-electrode side, although the air after water and a reaction is discharged outside from the anode side, carbon dioxide and the methanol aqueous solution after a reaction a direct methanol type fuel cell, It was known that a little formaldehyde generated as a by-product, formic acid, or the methyl formate produced by these reactions will mix into the excretions, and it was important how these are processed, after a direct methanol type fuel cell put in practical use.

[0007]

[Means for Solving the Problem]For the purpose of keeping outside from a by-product which it was made in order that this invention might solve an aforementioned problem, and was mentioned above being discharged by outside, the invention according to claim 1, A cell cell which opposite-<sup>\*\*</sup>(ed) a negative electrode and an anode via an electrolyte which consists of proton conductivity solid polymer membrane, Composition which supplies liquid fuel to a negative electrode and supplies oxidant gas to an anode is provided, And in a liquid fuel direct supply type fuel cell system provided with a power generation unit in which said cell cell or this cell cell consists of a laminated cell stack, While providing positive [ said ] and composition which separates a gas and a fluid from a resultant generated according to electrochemical reaction of a negative electrode, A gas ingredient recovery means which collects gas ingredients separated from said resultant, and is discharged to the atmosphere was established, and said gas ingredient recovery means was provided with a filter which absorbs or decomposes a by-product in a gas ingredient.

[0008]In the invention according to claim 2, in the liquid fuel direct supply type fuel cell system according to claim 1, a filter contains adsorption material, such as activated carbon or zeolite.

[0009]In the invention according to claim 3, in the liquid fuel direct supply type fuel cell system according to claim 1, a filter contains a precious-metals system catalyst and a silver system catalyst.

[0010]In the invention according to claim 4, in the liquid fuel direct supply type fuel cell system according to claim 1, a filter contains photocatalyst.

[0011]Namely, a by-product which was mentioned above according to the invention according to claim 1 to 4, Whether adsorption material, such as activated carbon or zeolite, is contained A precious-metals system catalyst, After making a filter of whether a silver system catalyst is contained or to contain photocatalyst penetrate, Since it is not discharged outside and is making, formic acid, formaldehyde, methanol, etc. which were generated by electrochemical reaction in a direct methanol type fuel cell are not discharged outside in the state of a steam.

[0012]

[Embodiment of the Invention]Hereafter, this invention is explained based on the embodiment.

[0013]Drawing 1 is a lineblock diagram of the direct methanol type fuel cell system shown as an example of the liquid fuel direct supply type fuel cell system concerning a 1st embodiment of this invention, and the feature, Opposite-\*\* the negative electrode 12 and the anode 13 via the electrolyte 11 which consists of proton conductivity solid polymer membrane, and the cell cell 1 is used as a power generation unit, It supplies from the fuel tank 2 which makes the methanol aqueous solution as liquid fuel concentration suitable for the electrochemical reaction, and stores it in said negative electrode 12, The air as oxidant gas is supplied to the anode 13 with the pump which is not illustrated, the electrochemical reaction of said cell cell 1 - it separating into a gas and a fluid and the generated resultant by the vapor-liquid-separation tub 3, The water as a liquid component and the methanol aqueous solutions contributed to the electrochemical reaction of the negative electrode are collected to the recovery tank as the liquid component recovery means 4, The air and carbon dioxide as a gas ingredient are collecting to the gas ingredient recovery means 5 provided with the filter, and having been [ the by-product in a gas ingredient was absorbed, or ] made to be decomposed with said filter it.

[0014]Drawing 2 is a lineblock diagram of the direct methanol type fuel cell system shown as an example of the liquid fuel direct supply type fuel cell system concerning a 2nd embodiment of this invention, The point of difference with the system of drawing 1 to the anode 13 the air as oxidant gas, The water which it is made to be supplied by natural diffusion or a free convection with a fan, and was generated according to the electrochemical reaction of the anode 13, and the air which contributed to the reaction, The carbon dioxide which was collected by the gas ingredient recovery means 51 provided with the filter, and was generated according to the electrochemical reaction of the negative electrode 12, and the methanol aqueous solution after

a reaction, It is separating into a gas and a fluid by the vapor-liquid-separation tub 3, collecting the carbon dioxide as a gas ingredient by the gas ingredient recovery means 52 provided with the filter, and having made it absorb or decompose the by-product in a gas ingredient with said filter. In the system of this 2nd embodiment, since the anode side of the cell cell 1 is wide opened in the atmosphere, the cell cell 1 whole is put into the case.

[0015]If said filter is made into the thing containing adsorption material, such as activated carbon or zeolite, If it is made what can adsorb a by-product like methanol, formaldehyde, formic acid, and methyl formate, and contains the precious-metals system catalyst and the silver system catalyst, and the thing containing the photocatalyst, Since said by-product can be decomposed into water and carbon dioxide, such a by-product can be prevented from being emitted into the atmosphere.

[0016]Although the example of the thing containing adsorption material, a precious-metals system catalyst, and a silver system catalyst is shown in drawing 3 as the gas ingredient recovery means 5, 51, and 52 provided with the above-mentioned filter, Although it is good to make the honeycomb layer illustrating these support and it shows drawing 4 the example of the thing containing the photocatalyst, In this case, while making the honeycomb layer support similarly, it is made to activate this, as it is made for sunlight to be irradiated by this or the light of a chemical lamp is irradiated.

[0017]Although the above-mentioned adsorption material and various catalysts may be used independently, they may combine each suitably. In this case, those synergistic effects are expectable.

[0018]Although the direct methanol type fuel cell system which uses a methanol aqueous solution for liquid fuel explained the above-mentioned embodiment, It is applicable also to the liquid fuel direct supply type fuel cell using liquid fuel other than a methanol aqueous solution, for example, ethyl alcohol, butanol, wood ether, etc.

[0019]Although the power generation unit explained what consists of the cell cell 1, the above-mentioned embodiment is applicable similarly, even if this cell cell 1 consists of a laminated cell stack and constitutes a power generation unit.

[0020]

[Effect of the Invention]As mentioned above, according to this invention, a methanol aqueous solution refining and the direct methanol type fuel cell that it can generate electricity without gasifying, It can face applying to small consumer uses, such as a portable power supply and a power supply for computers, the by-product can be removed certainly, and it can contribute to the composition of a direct methanol type fuel cell system suitable for the above-mentioned use.

---

[Translation done.]